

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/000070

International filing date: 06 January 2005 (06.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-002308  
Filing date: 07 January 2004 (07.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 March 2005 (03.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

11.01.2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 4 年   1 月   7 日  
Date of Application:

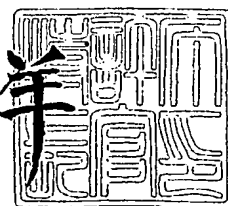
出 願 番 号            特 願 2 0 0 4 - 0 0 2 3 0 8  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 4 - 0 0 2 3 0 8 ]

出   願   人            日 立 化 成 工 業 株 式 会 社  
Applicant(s):

2 0 0 5 年   2 月 1 7 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川 洋



出証番号   出証特 2 0 0 5 - 3 0 1 1 3 6 8

【書類名】 特許願  
【整理番号】 H15-002910  
【提出日】 平成16年 1月 7日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H05K 3/32  
C09J 9/02

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県下館市大字五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社  
五所宮事業所内  
【氏名】 竹田 津 潤

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県下館市大字五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社  
五所宮事業所内  
【氏名】 渡辺 伊津夫

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県下館市大字五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社  
五所宮事業所内  
【氏名】 後藤 泰史

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県下館市大字五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社  
五所宮事業所内  
【氏名】 廣澤 幸寿

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県下館市大字五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社  
五所宮事業所内  
【氏名】 藤井 正規

【発明者】  
【住所又は居所】 茨城県下館市大字五所宮 1 1 5 0 番地 日立化成工業株式会社  
五所宮事業所内  
【氏名】 藤井 綾

【特許出願人】  
【識別番号】 000004455  
【氏名又は名称】 日立化成工業株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100088155  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 長谷川 芳樹

【選任した代理人】  
【識別番号】 100092657  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 寺崎 史朗

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 014708  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

第一の回路基板の主面上に複数の第一の回路電極が形成された第一の回路部材と、  
第二の回路基板の主面上に複数の第二の回路電極が形成された第二の回路部材と、  
を前記第一及び第二の回路電極が対向するように接続するための回路接続材料であって、  
接着剤組成物及び、導電粒子の表面の一部が絶縁性微粒子により被覆された被覆粒子を  
含有しており、

前記被覆粒子の比重は、前記導電粒子の比重の  $97/100 \sim 99/100$  である回路  
接続材料。

**【請求項 2】**

前記被覆粒子において、前記導電粒子の表面の  $5 \sim 60\%$  が前記絶縁性微粒子により被覆  
されていることを特徴とする請求項 1 に記載の回路接続材料。

**【請求項 3】**

前記絶縁性微粒子の平均粒径は、前記導電粒子の平均粒径の  $1/40 \sim 1/10$  であるこ  
とを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の回路接続材料。

**【請求項 4】**

前記絶縁性微粒子は、ラジカル重合性物質の重合物からなる請求項 1～3 のいずれか一項  
に記載の回路接続材料。

**【請求項 5】**

前記接着剤組成物は、ラジカル重合性物質と、加熱により遊離ラジカルを発生する硬化剤  
と、を含有することを特徴とする請求項 1～4 のいずれか一項に記載の回路接続材料。

**【請求項 6】**

フェノキシ樹脂からなるフィルム形成材を更に含有することを特徴とする請求項 1～5 の  
いずれか一項に記載の回路接続材料。

**【請求項 7】**

前記フェノキシ樹脂は、分子内に多環芳香族化合物に起因する分子構造を含有することを  
特徴とする請求項 6 に記載の回路接続材料。

**【請求項 8】**

前記多環芳香族化合物は、フルオレンであることを特徴とする請求項 7 に記載の回路接続  
材料。

**【請求項 9】**

請求項 1～8 のいずれか一項に記載の回路接続材料をフィルム状に形成してなることを特  
徴とするフィルム状回路接続材料。

**【請求項 10】**

第一の回路基板の主面上に複数の第一の回路電極が形成された第一の回路部材と、  
第二の回路基板の主面上に複数の第二の回路電極が形成された第二の回路部材と、  
前記第一の回路基板の前記主面と前記第二の回路基板の前記主面との間に設けられ、前  
記第一及び第二の回路電極が対向するように前記第一及び第二の回路部材同士を接続する  
回路接続部材と、

を備えた回路部材の接続構造であって、

前記回路接続部材は、請求項 1～8 のいずれか一項に記載の回路接続材料の硬化物から  
なり、

前記第一の回路電極と前記第二の回路電極とが、前記被覆粒子を介して電氣的に接続さ  
れている回路部材の接続構造。

**【請求項 11】**

隣り合う前記回路電極間に  $50\text{ V}$  の直流電圧を印加した場合に、隣り合う前記回路電極間  
の抵抗値が  $10^9 \Omega$  以上であることを特徴とする請求項 10 に記載の回路部材の接続構造  
。

**【請求項 12】**

前記第一及び第二の回路部材のうち少なくとも一方が IC チップであることを特徴とする

請求項 10 又は 11 に記載の回路部材の接続構造。

【請求項 13】

前記第一の回路電極と前記第二の回路電極との間の接続抵抗が  $1\ \Omega$  以下であることを特徴とする請求項 11～13 のいずれか一項に記載の回路部材の接続構造。

【請求項 14】

前記第一及び第二の回路電極のうち少なくとも一方が、金、銀、錫、白金族の金属及びインジウム錫酸化物からなる群より選ばれる少なくとも一種で構成される電極表面層を有することを特徴とする請求項 11～13 のいずれか一項に記載の回路部材の接続構造。

【請求項 15】

前記第一及び第二の回路部材のうち少なくとも一方が、窒化シリコン、シリコン化合物及びポリイミド樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種で構成される基板表面層を有することを特徴とする請求項 11～14 のいずれか一項に記載の回路部材の接続構造。

【請求項 16】

第一の回路基板の主面上に複数の第一の回路電極が形成された第一の回路部材と、第二の回路基板の主面上に複数の第二の回路電極が形成された第二の回路部材との間に、前記第一の回路電極と前記第二の回路電極とが対向した状態で、請求項 1～8 のいずれか一項に記載の回路接続材料を介在させる工程と、

前記回路接続材料を加熱及び加圧により硬化させる工程と、  
を備えた回路部材の接続構造の製造方法。

## 【書類名】明細書

【発明の名称】回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法

## 【技術分野】

【0001】

本発明は、回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法に関する。

## 【背景技術】

【0002】

液晶表示用ガラスパネルには、COG (Chip-On-Glass) 実装又はCOF (Chip-On-Flex) 実装等によって液晶駆動用ICが実装される。COG実装では、導電粒子を含む回路接続材料を用いて液晶駆動用ICを直接ガラスパネル上に接合する。COF実装では、金属配線を有するフレキシブルテープに液晶駆動用ICを接合し、導電粒子を含む回路接続材料を用いてそれらをガラスパネルに接合する。

【0003】

ところが、近年の液晶表示の高精細化に伴い、液晶駆動用ICの回路電極である金バンパは狭ピッチ化、狭面積化しており、そのため、回路接続材料中の導電粒子が隣り合う回路電極間に流出して、ショートが発生させるといった問題がある。また、隣り合う回路電極間に導電粒子が流出すると、金バンパとガラスパネルとの間に捕捉される回路接続材料中の導電粒子数が減少し、対向する回路電極間の接続抵抗が上昇し接続不良を起こすといった問題がある。

【0004】

そこで、これらの問題を解決する方法として、回路接続材料の少なくとも片面に絶縁性の接着層を形成することで、COG実装又はCOF実装における接合品質の低下を防ぐ方法（例えば、特許文献1参照）や、導電粒子の全表面を絶縁性の皮膜で被覆する方法（例えば、特許文献2参照）が開発されている。

【特許文献1】特開平8-279371号公報

【特許文献2】特許第2794009号公報（図2）

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、回路接続部材の片面に絶縁性の接着層を形成する方法では、バンパ面積が $3000\mu\text{m}^2$ 未満であって、安定した接続抵抗を得るために導電粒子数を増やす場合には、隣り合う回路電極間の絶縁性について未だ改良の余地がある。また、導電粒子の全表面を絶縁性の皮膜で被覆する方法では、対向する回路電極間の接続抵抗が上昇し、安定した電気抵抗が得られないという問題がある。

【0006】

そこで、本発明は、対向する回路電極間の接続抵抗を十分に低減でき、且つ、隣り合う回路電極間で絶縁性を十分に向上できる回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法を提供することを目的とする。

## 【課題を解決するための手段】

【0007】

上述の課題を解決するため、本発明の回路接続材料は、第一の回路基板の主面上に複数の第一の回路電極が形成された第一の回路部材と、第二の回路基板の主面上に複数の第二の回路電極が形成された第二の回路部材と、を第一及び第二の回路電極が対向するように接続するための回路接続材料であって、接着剤組成物及び、導電粒子の表面の一部が絶縁性微粒子により被覆された被覆粒子を含有しており、被覆粒子の比重は、導電粒子の比重の $97/100 \sim 99/100$ である。

【0008】

この回路接続材料を、第一及び第二の回路部材の間に介在させ、第一及び第二の回路部

材を介して加熱及び加圧し、硬化処理して、回路部材の接続構造を得ると、得られる回路部材の接続構造において、対向する回路電極間の接続抵抗が十分に低減されると共に、隣り合う回路電極間の絶縁性が十分に向上する。

【0009】

ここで、被覆粒子の比重が導電粒子の比重の97/100未満であると、絶縁性微粒子が過剰に導電粒子を被覆することとなる。このため、導電粒子が、対向する回路電極同士を接続しても、回路基板の厚み方向における接続抵抗が増大してしまう。一方、被覆粒子の比重が導電粒子の比重の99/100を超えると、導電粒子が絶縁性微粒子によって十分に被覆されなくなる。このため、隣り合う回路電極間の絶縁性、すなわち回路基板の面方向における絶縁性が不十分となってしまう。

【0010】

また、被覆粒子において、導電粒子の表面の5～60%が絶縁性微粒子により被覆されていると好ましい。

【0011】

導電粒子の表面が5%未満覆われていると、導電粒子が絶縁性微粒子によって十分に被覆されなくなるので、表面が5%以上覆われている場合に比べて、隣り合う回路電極間の絶縁性、すなわち回路基板の面方向における絶縁性が不十分となる。一方、導電粒子の表面が60%を超えて覆われていると、絶縁性微粒子が過剰に導電粒子を被覆するので、導電粒子が、対向する回路電極間を接続しても、表面が60%以下覆われている場合に比べて、回路基板の厚み方向における接続抵抗が増大する。

【0012】

また、絶縁性微粒子の平均粒径は、導電粒子の平均粒径の1/40～1/10であると好ましい。

【0013】

絶縁性微粒子の平均粒径が上記範囲内にあれば、平均粒径が当該範囲を外れた場合に比べて、導電粒子の表面が多数の絶縁性微粒子により覆われ易くなり、このような回路接続材料を用いて回路部材の接続構造を製造すると、隣り合う回路電極間の絶縁性、すなわち回路基板の面方向における絶縁性を更に向上できる。

【0014】

また、絶縁性微粒子は、ラジカル重合性物質の重合物からなると好ましい。この場合、絶縁性微粒子が導電粒子の表面に付着しやすくなるので、このような回路接続材料を用いて回路部材の接続構造を製造すると、隣り合う回路電極間の絶縁性、すなわち回路基板の面方向における絶縁性を更に向上できる。

【0015】

また、接着剤組成物は、ラジカル重合性物質と、加熱により遊離ラジカルを発生する硬化剤と、を含有すると好ましい。このような接着剤組成物を含む回路接続材料によって、第一及び第二の回路部材は加熱時に容易に接続される。

【0016】

また、上記回路接続材料は、フェノキシ樹脂からなるフィルム形成材を更に含有すると好ましい。これにより、回路接続材料をフィルム状に加工することが可能となる。

【0017】

また、フェノキシ樹脂は、分子内に多環芳香族化合物に起因する分子構造を含有すると好ましい。これにより、接着性、相溶性、耐熱性、機械強度等に優れた回路接続材料が得られる。

【0018】

また、多環芳香族化合物は、フルオレンであると好ましい。

【0019】

また、本発明のフィルム状回路接続材料は、本発明の回路接続材料をフィルム状に形成してなることを特徴とする。これにより、回路接続材料が裂ける、割れる、或いはべたつく等の問題が生じにくく、回路接続材料の取扱いが容易になる。

## 【0020】

また、本発明の回路部材の接続構造は、第一の回路基板の主面上に複数の第一の回路電極が形成された第一の回路部材と、第二の回路基板の主面上に複数の第二の回路電極が形成された第二の回路部材と、第一の回路基板の主面と第二の回路基板の主面との間に設けられ、第一及び第二の回路電極が対向するように第一及び第二の回路部材同士を接続する回路接続部材と、を備えた回路部材の接続構造であって、回路接続部材は、本発明の回路接続材料の硬化物からなり、第一の回路電極と第二の回路電極とが、被覆粒子を介して電気的に接続されている。

## 【0021】

このような回路部材の接続構造では、対向する回路電極間の接続抵抗を十分に低減できると共に、隣り合う回路電極間の絶縁性が十分に向上する。

## 【0022】

また、隣り合う回路電極間に50Vの直流電圧を印加した場合に、隣り合う回路電極間の抵抗値が $10^9 \Omega$ 以上であると好ましい。

## 【0023】

このような回路部材の接続構造によれば、その動作時において隣り合う回路電極間の絶縁性、すなわち回路基板の面方向における絶縁性が極めて高くなり、隣り合う回路電極間のショートを十分に防止することが可能となる。

## 【0024】

また、第一及び第二の回路部材のうち少なくとも一方がICチップであると好ましい。

## 【0025】

また、第一の回路電極と第二の回路電極との間の接続抵抗が $1 \Omega$ 以下であると好ましい。このような回路部材の接続構造では、対向する回路電極間の接続抵抗、すなわち回路基板の厚み方向における接続抵抗が十分に低減される。

## 【0026】

また、上記回路部材の接続構造は、第一及び第二の回路電極のうち少なくとも一方が、金、銀、錫、白金族の金属及びインジウム錫酸化物からなる群より選ばれる少なくとも一種で構成される電極表面層を有すると好ましい。

## 【0027】

また、上記回路部材の接続構造は、第一及び第二の回路部材のうち少なくとも一方が、窒化シリコン、シリコン化合物及びポリイミド樹脂からなる群より選ばれる少なくとも一種で構成される基板表面層を有すると好ましい。これにより、基板表面層が上記材料で構成されていない場合に比べて、回路部材と回路接続部材との接着強度が更に向上する。

## 【0028】

また、本発明の回路部材の接続構造の製造方法は、第一の回路基板の主面上に複数の第一の回路電極が形成された第一の回路部材と、第二の回路基板の主面上に複数の第二の回路電極が形成された第二の回路部材との間に、第一の回路電極と第二の回路電極とが対向した状態で、本発明の回路接続材料を介在させる工程と、回路接続材料を加熱及び加圧により硬化させる工程と、を備える。

## 【0029】

この製造方法を用いれば、対向する回路電極間の接続抵抗が十分に低減され、且つ、隣り合う回路電極間の絶縁性が向上した回路部材の接続構造を得ることができる。

## 【発明の効果】

## 【0030】

本発明によれば、COG実装又はCOF実装において、対向する回路電極間で低抵抗の電気接続が得られ、且つ、隣り合う回路電極間でショート発生率を抑制できる回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法を提供することができる。

## 【0031】

また、隣り合う回路電極間、すなわちバンプ間距離の狭い駆動用ICに対しても、接続



信頼性の高い回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0032】

以下、本発明の回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法の実施形態について説明する。なお、全図面中、同一要素には同一符号を用い、重複する説明は省略する。

【0033】

(回路部材の接続構造)

図1は、本発明の回路部材の接続構造(以下、「接続構造」という)の一実施形態を示す断面図である。本実施形態の接続構造10は、相互に対向する回路部材20(第一の回路部材)と回路部材30(第二の回路部材)とを備えており、回路部材20と回路部材30との間には、これらを接続する回路接続部材60が設けられている。

【0034】

回路部材20は、回路基板21(第一の回路基板)と、回路基板21の主面21a上に形成された複数の回路電極22(第一の回路電極)とを備える。複数の回路電極22は、例えばストライプ状に配置される。一方、回路部材30は、回路基板31(第二の回路基板)と、回路基板31の主面31a上に形成された複数の回路電極32(第二の回路電極)とを備える。複数の回路電極32も、例えばストライプ状に配置される。

【0035】

回路部材20, 30の具体例としては、半導体チップ、抵抗体チップ若しくはコンデンサチップ等のチップ部品又はプリント基板等の基板が挙げられる。接続構造10の接続形態としては、ICチップとチップ搭載基板との接続、電気回路相互の接続、COG実装又はCOF実装におけるICチップとガラス基板又はフレキシブルテープとの接続等もある。

【0036】

特に、回路部材20, 30のうち少なくとも一方がICチップであると好ましい。

【0037】

回路電極22, 32は、金、銀、錫、白金族の金属若しくはインジウム錫酸化物(ITO)又はこれらの二種以上の組み合わせで構成される電極表面層24, 34を電極部23, 33上にそれぞれ有すると好ましい。

【0038】

回路部材30は、窒化シリコン、シリコン化合物若しくはポリイミド樹脂又はこれらの二種以上の組み合わせで構成される基板表面層35を有すると好ましい。基板表面層35は、回路基板31をコーティングするか、又は回路基板31に付着している。この基板表面層35により、回路部材30と回路接続部材60との接着強度が向上する。

【0039】

特に、回路基板31がフレキシブルテープの場合、基板表面層35はポリイミド樹脂等の有機絶縁物質から構成されると好ましい。また、回路基板31がガラス基板の場合、基板表面層35は窒化シリコン、シリコン化合物、ポリイミド樹脂若しくはシリコン樹脂又はこれらの二種以上の組み合わせで構成されると好ましい。

【0040】

回路接続部材60は、回路基板21の主面21aと回路基板31の主面31aとの間に設けられており、回路電極22, 32が対向するように回路部材20, 30同士を接続している。また、回路接続部材60は、絶縁部材40と、導電粒子51の表面51aの一部が絶縁性微粒子52により被覆された被覆粒子50とを備える。被覆粒子50の比重は、導電粒子51の比重の97/100~99/100である。この被覆粒子50を介して、回路電極22と回路電極32とが電氣的に接続されている。

【0041】

ここで、回路接続部材60は、後述する回路接続材料の硬化物からなるので、接続構造

10では、対向する回路電極22, 32間の接続抵抗を十分に低減できると共に、隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性も十分に向上する。

#### 【0042】

隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性に着目すると、接続構造10においては、隣り合う回路電極22, 32間に50Vの直流電圧を印加した場合に、隣り合う回路電極22, 32間の抵抗値が $10^9 \Omega$ 以上となることが好ましい。このような接続構造10では、その動作時において隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性、すなわち回路基板21, 31の面方向における絶縁性が極めて高くなり、隣り合う回路電極22, 32間のショートを十分に防止することが可能となる。

#### 【0043】

対向する回路電極22, 32間の接続抵抗に着目すると、接続構造10においては、回路電極22と回路電極32との間の接続抵抗が $1 \Omega$ 以下となることが好ましい。このような接続構造10では、対向する回路電極22, 32間の接続抵抗、すなわち回路基板21, 31の厚み方向における接続抵抗が十分に低減される。

#### 【0044】

##### (回路接続材料)

本実施形態に係る回路接続材料は、接着剤組成物及び被覆粒子50を含有している。この回路接続材料を、回路部材20, 30の間に介在させ、回路部材20, 30を介して加熱及び加圧し、硬化処理して、接続構造10を得ると、得られる接続構造10において、対向する回路電極22, 32間の接続抵抗が十分に低減されると共に、隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性が十分に向上する。

#### 【0045】

##### <接着剤組成物>

接着剤組成物は、ラジカル重合性物質と、加熱により遊離ラジカルを発生する硬化剤と、を含有すると好ましい。このような接着剤組成物を含む回路接続材料によって、回路部材20, 30は加熱時に容易に接続される。

#### 【0046】

ラジカル重合性物質は、ラジカルにより重合する官能基を有する物質であり、このようなラジカル重合性物質としては、アクリレート（対応するメタクリレートも含む。以下同じ）化合物、マレイミド化合物等が挙げられる。ラジカル重合性物質はモノマー又はオリゴマーの状態で用いてもよく、また、モノマーとオリゴマーを併用することも可能である。

#### 【0047】

アクリレート化合物の具体例としては、メチルアクリレート、エチルアクリレート、イソプロピルアクリレート、イソブチルアクリレート、エチレングリコールジアクリレート、ジエチレングリコールジアクリレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、テトラメチロールメタンテトラアクリレート、2-ヒドロキシー-1, 3-ジアクリロキシプロパン、2, 2-ビス[4-(アクリロキシメトキシ)フェニル]プロパン、2, 2-ビス[4-(アクリロキシポリエトキシ)フェニル]プロパン、ジシクロペンテニルアクリレート、トリシクロデカニルアクリレート、トリス(アクリロイロキシエチル)イソシアヌレート、ウレタンアクリレート等が挙げられる。これらは単独で又は2種以上を混合して用いることができる。また、必要によりハドロキノン、メチルエーテルハドロキノン類等の重合禁止剤を用いてもよい。また、耐熱性を向上させる点からは、アクリレート化合物がジシクロペンテニル基、トリシクロデカニル基及びトリアジン環からなる群より選ばれる少なくとも1つの置換基を有することが好ましい。

#### 【0048】

マレイミド化合物は、分子中にマレイミド基を少なくとも2個以上含有するものであり、このようなマレイミド化合物としては、例えば、1-メチル-2, 4-ビスマレイミドベンゼン、N, N'-m-フェニレンビスマレイミド、N, N'-p-フェニレンビスマレイミド、N, N'-m-トルイレンビスマレイミド、N, N'-4, 4-ビフェニレンビ

スマレイミド、N, N' -4, 4- (3, 3'-ジメチルビフェニレン) ビスマレイミド、N, N' -4, 4- (3, 3'-ジメチルジフェニルメタン) ビスマレイミド、N, N' -4, 4- (3, 3'-ジエチルジフェニルメタン) ビスマレイミド、N, N' -4, 4-ジフェニルメタンビスマレイミド、N, N' -4, 4-ジフェニルプロパンビスマレイミド、N, N' -3, 3'-ジフェニルスルホンビスマレイミド、N, N' -4, 4-ジフェニルエーテルビスマレイミド、2, 2-ビス (4- (4-マレイミドフェノキシ) フェニル) プロパン、2, 2-ビス (3-s-ブチル-4, 8- (4-マレイミドフェノキシ) フェニル) プロパン、1, 1-ビス (4- (4-マレイミドフェノキシ) フェニル) デカン、4, 4'-シクロヘキシリデン-ビス (1- (4-マレイミドフェノキシ) -2-シクロヘキシルベンゼン、2, 2-ビス (4- (4-マレイミドフェノキシ) フェニル) ヘキサフルオロプロパン等を挙げることができる。これらは単独で又は2種以上を混合して使用できる。

#### 【0049】

加熱により遊離ラジカルを発生する硬化剤は、加熱により分解して遊離ラジカルを発生する硬化剤であり、このような硬化剤としては、過酸化化合物、アゾ系化合物等が挙げられる。このような硬化剤は、目的とする接続温度、接続時間、ポットライフ (可使時間) 等により適宜選定される。これらの中でも、反応性を高め、ポットライフを向上させることが可能となることから、半減期10時間の温度が40℃以上で、かつ、半減期1分の温度が180℃以下の有機過酸化物が好ましく、半減期10時間の温度が60℃以上で、かつ、半減期1分の温度が170℃以下の有機過酸化物がより好ましい。

#### 【0050】

硬化剤の配合量は、接続時間を10秒以下とする場合、十分な反応率を得るために、ラジカル重合性物質と必要により配合されるフィルム形成材との和100重量部に対して、0.1~30重量部であることが好ましく、1~20重量部であることがより好ましい。

#### 【0051】

硬化剤の配合量が0.1重量部未満では、十分な反応率を得ることができず、良好な接着強度又は小さな接続抵抗が得られにくくなる傾向にある。硬化剤の配合量が30重量部を超えると、接着剤組成物の流動性が低下したり、接続抵抗が上昇したり、接着剤組成物のポットライフが短くなる傾向にある。

#### 【0052】

より具体的には、加熱により遊離ラジカルを発生する硬化剤として、ジアシルパーオキサイド、パーオキシジカーボネート、パーオキシエステル、パーオキシケタール、ジアルキルパーオキサイド、ハイドロパーオキサイド、シリルパーオキサイド等が挙げられる。また、回路電極22, 32の腐食を抑えるという観点からは、硬化剤は、硬化剤中に含有される塩素イオンや有機酸の濃度が5000ppm以下であることが好ましく、さらに、加熱分解後に発生する有機酸が少ないものがより好ましい。このような硬化剤は、具体的には、パーオキシエステル、ジアルキルパーオキサイド、ハイドロパーオキサイド、シリルパーオキサイドから選定され、高反応性が得られるパーオキシエステルから選定されることがより好ましい。上記硬化剤は、適宜混合して用いることができる。

#### 【0053】

ジアシルパーオキサイドとしては、イソブチルパーオキサイド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド、3, 5, 5-トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ラウロイルパーオキサイド、ステアロイルパーオキサイド、スクシニクパーオキサイド、ベンゾイルパーオキシトルエン、ベンゾイルパーオキサイド等が挙げられる。

#### 【0054】

パーオキシジカーボネートとしては、ジ-n-プロピルパーオキシジカーボネート、ジイソプロピルパーオキシジカーボネート、ビス (4-*t*-ブチルシクロヘキシル) パーオキシジカーボネート、ジ-2-エトキシメトキシパーオキシジカーボネート、ジ (2-エチルヘキシルパーオキシ) ジカーボネート、ジメトキシブチルパーオキシジカーボネート

、ジ(3-メチル-3-メトキシブチルパーオキシ)ジカーボネート等が挙げられる。

【0055】

パーオキシエステルとしては、クミルパーオキシネオデカノエート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシネオデカノエート、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシネオデカノエート、*t*-ヘキシルパーオキシネオデカノエート、*t*-ブチルパーオキシピバレート、1, 1, 3, 3-テトラメチルブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(2-エチルヘキサノイルパーオキシ)ヘキサン、1-シクロヘキシル-1-メチルエチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシイソブチレート、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)シクロヘキサン、*t*-ヘキシルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ブチルパーオキシ-3, 5, 5-トリメチルヘキサノエート、*t*-ブチルパーオキシラウレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*m*-トルオイルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルモノカーボネート、*t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキシルモノカーボネート、*t*-ヘキシルパーオキシベンゾエート、*t*-ブチルパーオキシアセテート等が挙げられる。

【0056】

パーオキシケタールとしては、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ヘキシルパーオキシ)シクロヘキサン、1, 1-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)-3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、1, 1-*t*-ブチルパーオキシシクロドデカン、2, 2-ビス(*t*-ブチルパーオキシ)デカン等が挙げられる。

【0057】

ジアルキルパーオキサイドとしては、 $\alpha$ ,  $\alpha'$ -ビス(*t*-ブチルパーオキシ)ジイソプロピルベンゼン、ジクミルパーオキサイド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、*t*-ブチルクミルパーオキサイド等が挙げられる。

【0058】

ハイドロパーオキサイドとしては、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、クメンハイドロパーオキサイド等が挙げられる。

【0059】

シリルパーオキサイドとしては、*t*-ブチルトリメチルシリルパーオキサイド、ビス(*t*-ブチル)ジメチルシリルパーオキサイド、*t*-ブチルトリビニルシリルパーオキサイド、ビス(*t*-ブチル)ジビニルシリルパーオキサイド、トリス(*t*-ブチル)ビニルシリルパーオキサイド、*t*-ブチルトリアリルシリルパーオキサイド、ビス(*t*-ブチル)ジアリルシリルパーオキサイド、トリス(*t*-ブチル)アリルシリルパーオキサイド等が挙げられる。

【0060】

これらの硬化剤は、単独で又は2種以上を混合して使用することができ、分解促進剤、抑制剤等を混合して用いてもよい。また、これらの硬化剤をポリウレタン系、ポリエステル系の高分子物質等で被覆してマイクロカプセル化したものは、ポットライフが延長されるために好ましい。

【0061】

<被覆粒子>

被覆粒子50は、導電粒子51の表面51aの一部が絶縁性微粒子52により被覆されたものである。被覆粒子50の比重は、導電粒子51の比重の97/100~99/100である。

【0062】

被覆粒子50の比重が導電粒子51の比重の97/100未満であると、絶縁性微粒子52が過剰に導電粒子51を被覆することとなる。このため、導電粒子51が、対向する回路電極22, 32同士を接続しても、回路基板21, 31の厚み方向における接続抵抗

が増大してしまう。一方、被覆粒子50の比重が導電粒子51の比重の99/100を超えると、導電粒子51が絶縁性微粒子52によって十分に被覆されなくなる。このため、隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性、すなわち回路基板21, 31の面方向における絶縁性が不十分となってしまう。

【0063】

また、被覆粒子50において、導電粒子51の表面51aの5~60%が絶縁性微粒子52により被覆されていると好ましい。

【0064】

導電粒子51の表面51aが5%未満覆われていると、導電粒子51が絶縁性微粒子52によって十分に被覆されなくなるので、表面51aが5%以上被覆されている場合に比べて、隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性、すなわち回路基板21, 31の面方向における絶縁性が不十分となる。一方、導電粒子51の表面51aが60%を超えて覆われていると、絶縁性微粒子52が過剰に導電粒子51を被覆するので、導電粒子51が、対向する回路電極22, 32間を接続しても、表面51aが60%以下被覆されている場合に比べて、回路基板21, 31の厚み方向における接続抵抗が増大する。

【0065】

また、絶縁性微粒子52の平均粒径 $d_i$ は、導電粒子51の平均粒径 $d_c$ の $1/40 \sim 1/10$ であると好ましい。

【0066】

絶縁性微粒子52の平均粒径 $d_i$ が上記範囲内にあれば、平均粒径 $d_i$ が当該範囲を外れた場合に比べて、導電粒子51の表面51aが多数の絶縁性微粒子52により覆われ易くなり、このような回路接続材料を用いて接続構造10を製造すると、隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性、すなわち回路基板21, 31の面方向における絶縁性を更に向上できる。

【0067】

導電粒子51としては、Au、Ag、Ni、Cu、はんだ等からなる金属粒子又はカーボン等からなる粒子等が挙げられる。導電粒子51は、熱溶融金属粒子であると好ましい。この場合、回路電極22, 32同士を接続する際の加熱及び加圧により導電粒子51が変形し易いので、導電粒子51と回路電極22, 32との接触面積が増加し、接続信頼性が向上する。

【0068】

また、図2に示すように、導電粒子51は、核体51xと、核体51xの表面を被覆するように形成された外層51yとを備えるものであってもよい。なお、図2は、本発明の回路接続材料に用いられる被覆粒子の一例を示す断面図である。

【0069】

十分なポットライフを得るためには、外層51yがNi、Cu等の遷移金属類からなるのではなく、Au、Ag、白金族等の貴金属類からなると好ましく、Auからなるとより好ましい。また、導電粒子51は、Ni等の遷移金属類からなる核体51xをAu等の貴金属類からなる外層51yで被覆したものでもよい。

【0070】

また、導電粒子51は、非導電性のガラス、セラミック、プラスチック等からなる核体51x表面上に貴金属類からなる外層51yを形成したものであると好ましい。この場合、回路電極22, 32同士を接続する際の加熱及び加圧により導電粒子51が変形し易いので、導電粒子51と回路電極22, 32との接触面積が増加し、接続信頼性が向上する。

【0071】

貴金属類の外層51yの厚みは、100オングストローム以上であると好ましい。この場合、回路電極22, 32間で良好な接続抵抗を得ることができる。また、Ni等の遷移金属類からなる核体51x表面に貴金属類の外層51yを形成する場合、貴金属類の外層51yの厚みは、300オングストローム以上であると好ましい。貴金属類の外層51yの

厚みが300オングストローム未満であると、例えば導電粒子51を混合分散する際に外層51yに欠損等が生じる。この欠陥等が生じた場所に、酸化還元作用による遊離ラジカルが発生し、回路接続材料の保存性を低下させてしまうおそれがある。そして、外層51yの厚みが厚くなると外層51yの効果が飽和してくるので、外層51yの厚みは1マイクロメートル以下であると好ましい。

#### 【0072】

また、導電粒子51は、接着剤組成物100体積部に対して0.1~30体積部添加することが好ましく、その添加量は用途により使い分ける。なお、過剰な導電粒子51による隣接回路電極の短絡等を防止するためには、0.1~10体積部添加することがより好ましい。

#### 【0073】

絶縁性微粒子52は、ラジカル重合性物質の重合物からなると好ましい。この場合、絶縁性微粒子52が導電粒子51の表面51aに付着しやすくなるので、このような回路接続材料を用いて接続構造10を製造すると、隣り合う回路電極22, 32間の絶縁性、すなわち回路基板21, 31の面方向における絶縁性を更に向上できる。

#### 【0074】

ラジカル重合性物質としては、接着剤組成物に含まれるラジカル重合性物質と同様のものが例示できる。

#### 【0075】

また、上記回路接続材料は、フェノキシ樹脂からなるフィルム形成材を更に含有すると好ましい。これにより、回路接続材料をフィルム状に加工してフィルム状回路接続材料を得ることができる。

#### 【0076】

図3は、本発明のフィルム状回路接続材料の一実施形態を示す断面図である。本実施形態のフィルム状回路接続材料61は、上記接着剤組成物からなるフィルム状絶縁部材41と、被覆粒子50とを備える。このフィルム状回路接続材料61は、上記回路接続材料をフィルム状に形成してなる。これにより、回路接続材料が裂ける、割れる、或いはべたつく等の問題が生じにくく、通常の状態（常温常圧）で回路接続材料の取扱いが容易になる。さらに、フィルム状回路接続材料61が、加熱により遊離ラジカルを発生する硬化剤を含有する層と被覆粒子50を含有する層の2層以上に分割されていると、ポットライフが向上する。

#### 【0077】

##### <フィルム形成材>

フィルム形成材とは、液状物を固化し構成組成物をフィルム形状とした場合に、そのフィルムの取扱いを容易とし、容易に裂けたり、割れたり、べたついたりしない機械的特性等を付与するものであり、通常の状態（常温常圧）でフィルムとしての取扱いができるものである。フィルム形成材としては、フェノキシ樹脂、ポリビニルホルマール樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、キシレン樹脂、ポリウレタン樹脂等が挙げられる。これらの中でも、接着性、相溶性、耐熱性、機械的強度に優れることからフェノキシ樹脂が好ましい。

#### 【0078】

フェノキシ樹脂は、2官能フェノール類とエピハロヒドリンを高分子量まで反応させるか、又は2官能エポキシ樹脂と2官能フェノール類を重付加させることにより得られる樹脂である。フェノキシ樹脂は、例えば2官能フェノール類1モルとエピハロヒドリン0.985~1.015モルとをアルカリ金属水酸化物等の触媒の存在下、非反応性溶媒中40~120℃の温度で反応させることにより得ることができる。また、フェノキシ樹脂としては、樹脂の機械的特性や熱的特性の点からは、特に2官能性エポキシ樹脂と2官能性フェノール類の配合当量比をエポキシ基/フェノール水酸基=1/0.9~1/1.1とし、アルカリ金属化合物、有機リン系化合物、環状アミン系化合物等の触媒存在下、沸点が120℃以上のアミド系、エーテル系、ケトン系、ラクトン系、アルコール系等の有機

溶剤中で、反応固形分が50重量部以下の条件で50～200℃に加熱して重付加反応させて得たものが好ましい。

【0079】

2官能エポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂等が挙げられる。2官能フェノール類は、2個のフェノール性水酸基を持つものであり、このような2官能フェノール類としては、例えばビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールAD、ビスフェノールS等のビスフェノール類等が挙げられる。

【0080】

また、フェノキシ樹脂は、その分子内に多環芳香族化合物に起因する分子構造を含有すると好ましい。これにより、接着性、相溶性、耐熱性、機械強度等に優れた回路接続材料が得られる。

【0081】

多環芳香族化合物としては、例えばナフタレン、ビフェニル、アセナフテン、フルオレン、ジベンゾフラン、アントラセン、フェナンスレン等のジヒドロキシ化合物等が挙げられる。ここで、多環芳香族化合物はフルオレンであると好ましい。さらに、多環芳香族化合物は、9, 9'-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレンであると特に好ましい。

【0082】

なお、フェノキシ樹脂は、ラジカル重合性の官能基により変性されていてもよい。また、フェノキシ樹脂は、単独で用いても、2種類以上を混合して用いてもよい。

【0083】

<その他の含有成分>

本実施形態の回路接続材料は、更に、アクリル酸、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル及びアクリロニトリルからなる群より選ばれる少なくとも一種をモノマー成分とした重合体又は共重合体を含んでもよい。ここで、応力緩和に優れることから、グリシジルエーテル基を含有するグリシジルアクリレートやグリシジルメタクリレートを含む共重合体系アクリルゴムを併用することが好ましい。これらアクリルゴムの分子量(重量平均分子量)は、接着剤の凝集力を高める点から20万以上が好ましい。

【0084】

また、本実施形態の回路接続材料には、更に、充填剤、軟化剤、促進剤、老化防止剤、難燃化剤、色素、チキソトロピック剤、カップリング剤、フェノール樹脂、メラミン樹脂、イソシアネート類等を含有することもできる。

【0085】

回路接続材料に充填剤を含有させる場合、接続信頼性等が向上するので好ましい。充填剤は、その最大径が導電粒子51の平均粒径未満であれば使用できる。充填剤の配合量は、接着剤組成物100体積部に対して5～60体積部であることが好ましい。配合量が60体積部を超えると、接続信頼性向上効果が飽和する傾向があり、他方、5体積部未満では充填剤添加の効果が不充分となる傾向がある。

【0086】

カップリング剤としては、ケチミン、ビニル基、アクリル基、アミノ基、エポキシ基又はイソシアネート基を含有する化合物が、接着性が向上するので好ましい。

【0087】

具体的には、アミノ基を有するシランカップリング剤として、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-フェニルγ-アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。ケチミンを有するシランカップリング剤として、上記のアミノ基を有するシランカップリング剤に、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等のケトン化合物を反応させて得られたものが挙げられる。

【0088】

次に、図 4 及び図 1 を参照して、本発明の回路部材の接続構造の製造方法の一実施形態について説明する。本実施形態では、上記接続構造 10 の製造方法について説明する。

【0089】

(回路部材の接続構造の製造方法)

図 4 は、接続構造 10 の製造方法の一工程を示す断面図である。まず、回路部材 20, 30 を準備する。一方、フィルム状に成形してなるフィルム状回路接続材料 61 を準備する。次に、回路部材 20 と回路部材 30 との間に、回路電極 22 と回路電極 32 とが対向した状態で、フィルム状回路接続材料 61 を介在させる。具体的には、例えば回路部材 30 上にフィルム状回路接続材料 61 を載せ、続いてフィルム状回路接続材料 61 上に回路部材 20 を載せる。ここで、フィルム状回路接続材料 61 はフィルム状であるため取扱いが容易である。このため、このフィルム状回路接続材料 61 によれば、回路部材 20, 30 を接続する際に、これらの間に回路接続材料を容易に介在させることができ、回路部材 20, 30 の接続作業を容易に行うことができる。

【0090】

次に、回路部材 20, 30 を介してフィルム状回路接続材料 61 を加熱しながら図 4 の矢印 A 及び B 方向に加熱及び加圧して硬化処理を施し (図 4 参照)、回路部材 20, 30 の間に回路接続部材 60 を形成する (図 1 参照)。加熱及び加圧の際に、回路部材 20, 30 のいずれか一方の側から光を照射して、回路電極 22, 23 の位置合わせを行ってもよい。なお、硬化処理は、一般的な方法により行うことが可能であり、その方法は接着剤組成物により適宜選択される。

【0091】

この製造方法を用いれば、対向する回路電極 22, 32 間の接続抵抗が十分に低減され、且つ、隣り合う回路電極 22, 32 間の絶縁性が十分に向上された接続構造 10 を得ることができる。

【0092】

以上、本発明の好適な実施形態について詳細に説明したが、本発明は上記実施形態に限定されない。

【0093】

例えば、上記実施形態では、回路電極 22, 32 がいずれも電極表面層 24, 34 を有するとしたが、回路電極 22, 32 のうち少なくとも一方が電極表面層を有するとしてもよい。

【0094】

また、上記実施形態では、回路部材 30 が基板表面層 35 を有するとしたが、回路部材 20, 30 のうち少なくとも一方が基板表面層を有するとしてもよい。

【0095】

また、上記実施形態では、フィルム状回路接続材料 61 を用いて接続構造 10 を製造しているが、フィルム状回路接続材料 61 に限られずフィルム形成材を含まない回路接続材料を用いてもよい。この場合でも、回路接続材料を溶媒に溶解させ、その溶液を回路部材 20, 30 のいずれかに塗布して乾燥させれば、回路部材 20, 30 間に回路接続材料を介在させることができる。

【0096】

また、上記実施形態では、回路接続材料が導電粒子 51 を含有するとしたが、導電粒子 51 を含有していなくてもよい。この場合であっても、対向する回路電極 22, 32 が各々直接接触することにより電気的な接続が得られる。なお、導電粒子 51 を含有する場合には、導電粒子 51 を含有しない場合に比べて、より安定な電気的接続が得られる。

【実施例】

【0097】

以下、本発明の内容を、実施例を用いて更に具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0098】



## (実施例1)

まず、ビスフェノールA型エポキシ樹脂とビスフェノールAとからガラス転移温度が80℃のフェノキシ樹脂を合成した。このフェノキシ樹脂50gを、重量比でトルエン（沸点110.6℃、SP値8.90）／酢酸エチル（沸点77.1℃、SP値9.10）＝50／50の混合溶剤に溶解して、固形分40重量％の溶液とした。そして、固形分重量比でフェノキシ樹脂60g、ジシクロペンテニルジアルコールジアクリレート39g、リン酸エステル型アクリレート1g、*t*-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノネート5gとなるように溶液を調整した。

## 【0099】

一方、ラジカル重合性物質（アクリレートモノマー）の重合物からなる絶縁性微粒子を用いて、被覆後の比重が被覆前の比重に対して98／100となるように導電粒子の表面の20％を被覆し、被覆粒子を得た。なお、導電粒子は、ポリスチレンからなる核体の表面に、厚み0.2μmのニッケル層を有し、このニッケル層の外側に厚み0.04μmの金属層を有するものである。また、導電粒子としては、平均粒径が5μmの導電粒子を使用した。

## 【0100】

この被覆粒子を、上記溶液に5体積％配合分散させて、溶液を調整した。そして、この溶液を、片面を表面処理した厚み80μmのPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃で10分の熱風乾燥により、PETフィルム上に厚みが10μmの第1フィルム状材料を得た。

## 【0101】

また、固形分重量比でフェノキシ樹脂60g、ジシクロペンテニルジアルコールジアクリレート39g、リン酸エステル型アクリレート1g、*t*-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノネート5gとなるように別の溶液を調整した。この溶液を、片面を表面処理した厚み80μmのPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃で10分の熱風乾燥により、PETフィルム上に厚みが10μmで接着剤組成物からなる第2フィルム状材料を得た。

## 【0102】

上記第1フィルム状材料及び上記第2フィルム状材料をラミネーターにて貼り合わせ、二層構成のフィルム状回路接続材料を得た。

## 【0103】

## (実施例2)

まず、ビスフェノールA型エポキシ樹脂と9,9'-ビス（4-ヒドロキシフェニル）フルオレンとからガラス転移温度が80℃のフェノキシ樹脂を合成した。このフェノキシ樹脂50gを、重量比でトルエン（沸点110.6℃、SP値8.90）／酢酸エチル（沸点77.1℃、SP値9.10）＝50／50の混合溶剤に溶解して、固形分40重量％の溶液とした。そして、固形分重量比でフェノキシ樹脂60g、ジシクロペンテニルジアルコールジアクリレート39g、リン酸エステル型アクリレート1g、*t*-ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノネート5gとなるように溶液を調整した。

## 【0104】

一方、ラジカル重合性物質（アクリレートモノマー）の重合物からなる絶縁性微粒子を用いて、被覆後の比重が被覆前の比重に対して97／100となるように導電粒子の表面の40％を被覆し、被覆粒子を得た。なお、導電粒子は、ポリスチレンからなる核体の表面に、厚み0.2μmのニッケル層を有し、このニッケル層の外側に厚み0.04μmの金属層を有するものである。また、導電粒子としては、平均粒径が5μmの導電粒子を使用した。

## 【0105】

この被覆粒子を、上記溶液に5体積％配合分散させて、溶液を調整した。そして、この溶液を、片面を表面処理した厚み80μmのPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルムに塗工装置を用いて塗布し、70℃で10分の熱風乾燥により、PETフィルム上に

厚みが  $10\ \mu\text{m}$  の第 1 フィルム状材料を得た。

【0106】

また、固形分重量比でフェノキシ樹脂 60 g、ジシクロペンテニルジアルコールジアクリレート 39 g、リン酸エステル型アクリレート 1 g、 $t$ -ヘキシルパーオキシ-2-エチルヘキサノネート 5 g となるように別の溶液を調整した。この溶液を、片面を表面処理した厚み  $80\ \mu\text{m}$  の PET (ポリエチレンテレフタレート) フィルムに塗工装置を用いて塗布し、 $70^\circ\text{C}$  で 10 分の熱風乾燥により、PET フィルム上に厚みが  $10\ \mu\text{m}$  で接着剤組成物からなる第 2 フィルム状材料を得た。

【0107】

上記第 1 フィルム状材料及び上記第 2 フィルム状材料をラミネーターにて貼り合わせ、二層構成のフィルム状回路接続材料を得た。

【0108】

(比較例 1)

実施例 1 における被覆粒子の代わりに、絶縁性微粒子で被覆されていない導電粒子を用いた他は、実施例 1 と同様にして二層構成のフィルム状回路接続材料を得た。すなわち、導電粒子の被覆率は 0 % である。

【0109】

(比較例 2)

実施例 1 における被覆粒子の代わりに、以下の被覆粒子を用いた他は、実施例 1 と同様にして二層構成のフィルム状回路接続材料を得た。

【0110】

ラジカル重合性物質 (アクリレートモノマー) の重合物からなる絶縁性微粒子を用いて、被覆後の比重が被覆前の比重に対して  $95/100$  となるように導電粒子の表面の 70 % を被覆し、被覆粒子を得た。なお、導電粒子は、ポリスチレンからなる核体の表面に、厚み  $0.2\ \mu\text{m}$  のニッケル層を有し、このニッケル層の外側に厚み  $0.04\ \mu\text{m}$  の金層を有するものである。また、導電粒子としては、平均粒径が  $5\ \mu\text{m}$  の導電粒子を使用した。

【0111】

(回路部材の接続構造の作製)

まず、第一の回路部材として、バンプ面積  $50\ \mu\text{m} \times 50\ \mu\text{m}$ 、ピッチ  $100\ \mu\text{m}$ 、高さ  $20\ \mu\text{m}$  の金バンプを配置した IC チップを準備した。次に、第二の回路部材として、厚み  $1.1\ \text{mm}$  のガラス基板上にインジウム錫酸化物 (ITO) の回路を蒸着により形成した ITO 基板 (表面抵抗  $< 20\ \Omega/\square$ ) を準備した。

【0112】

そして、IC チップと ITO 基板との間に実施例 1, 2 及び比較例 1, 2 のフィルム状回路接続材料を介在させ、IC チップ、フィルム状回路接続材料及び ITO 基板を石英ガラスと加圧ヘッドとで挟み、 $200^\circ\text{C}$ 、 $100\ \text{MPa}$  で 10 秒間加熱及び加圧した。このようにして、フィルム状回路接続材料を介して IC チップと ITO 基板とを接続した。このとき、ITO 基板上にあらかじめフィルム状回路接続材料の一方の接着面を  $70^\circ\text{C}$ 、 $0.5\ \text{MPa}$  で 5 秒間加熱及び加圧して貼り付けた。その後、PET フィルムを剥離して、フィルム状回路接続材料の他方の接着面を IC チップと接続した。

【0113】

以上のようにして、回路部材の接続構造 A~D を作製した。なお、回路部材の接続構造 A~D は、それぞれ実施例 1, 2 及び比較例 1, 2 のフィルム状回路接続材料を用いて作製したものである。

【0114】

(比重の測定)

実施例 1, 2 及び比較例 1, 2 のフィルム状回路接続材料各々について、被覆前の導電粒子及び被覆後の被覆粒子、それぞれ  $3.5\ \text{cc}$  をサンプリングし、室温、ヘリウム雰囲気中で比重計 (島津製作所株式会社製、アキュピック 1330-01) を用いて比重を測定し、被覆前の導電粒子の比重に対する被覆後の被覆粒子の比重 (比重比) を求めた。結

果を表 1 に示す。

【0115】

(対向する回路電極間の接続抵抗の測定)

回路部材の接続構造 A～D について、初期（接続直後）の接続抵抗と、 $-40^{\circ}\text{C}$  で 30 分及び  $100^{\circ}\text{C}$  で 30 分の温度サイクル槽中に 500 サイクル保持した後の接続抵抗を、2 端子測定法を用いマルチメータで測定した。結果を表 2 に示す。ここで、接続抵抗とは対向する回路電極間の抵抗を意味する。

【0116】

(隣り合う回路電極間の絶縁抵抗の測定)

回路部材の接続構造 A～D について、直流 (DC) 50 V の電圧を 1 分間印加した後の絶縁抵抗を、2 端子測定法を用いマルチメータで測定した。結果を表 2 に示す。ここで、絶縁抵抗とは隣り合う回路電極間の抵抗を意味する。

【0117】

【表 1】

	実施例 1	実施例 2	比較例 1	比較例 2
被覆前後の比重比	98/100	97/100	—	95/100
被覆率 (%)	20	40	0	70

【0118】

【表 2】

		接続構造 A	接続構造 B	接続構造 C	接続構造 D
接続抵抗 ( $\Omega$ )	初期	$<1$	$<1$	$<1$	2
	温度サイクル後	$<1$	$<1$	$<1$	$>20$
絶縁抵抗 ( $\Omega$ )		$>10^{12}$	$>10^{12}$	$<10^4$	$>10^{12}$

【0119】

実施例 1, 2 のフィルム状回路接続材料を用いて得られた回路部材の接続構造 A, B では、初期、温度サイクル後のいずれにおいても接続抵抗は十分低く抑えられており、絶縁抵抗も十分高くなっていた。

【0120】

これに対し、比較例 1 のフィルム状回路接続材料を用いて得られた回路部材の接続構造 C では、接続構造 A, B に比べて絶縁抵抗が低くなっていた。また、比較例 2 のフィルム状回路接続材料を用いて得られた回路部材の接続構造 D では、初期、温度サイクル後のいずれにおいても、接続構造 A, B に比べて接続抵抗が高くなっていた。

【0121】

以上より、本発明の回路接続材料を用いて回路部材の接続構造を製造した場合には、得られる回路部材の接続構造において対向する回路電極間の接続抵抗を十分に低減でき、且つ、隣り合う回路電極間の絶縁性を十分に向上できることが確認された。

【図面の簡単な説明】

【0122】

【図 1】 本発明の回路部材の接続構造の一実施形態を示す断面図である。

【図 2】 本発明の回路接続材料に用いられる被覆粒子の一例を示す断面図である。

【図 3】 本発明のフィルム状回路接続材料の一実施形態を示す断面図である。

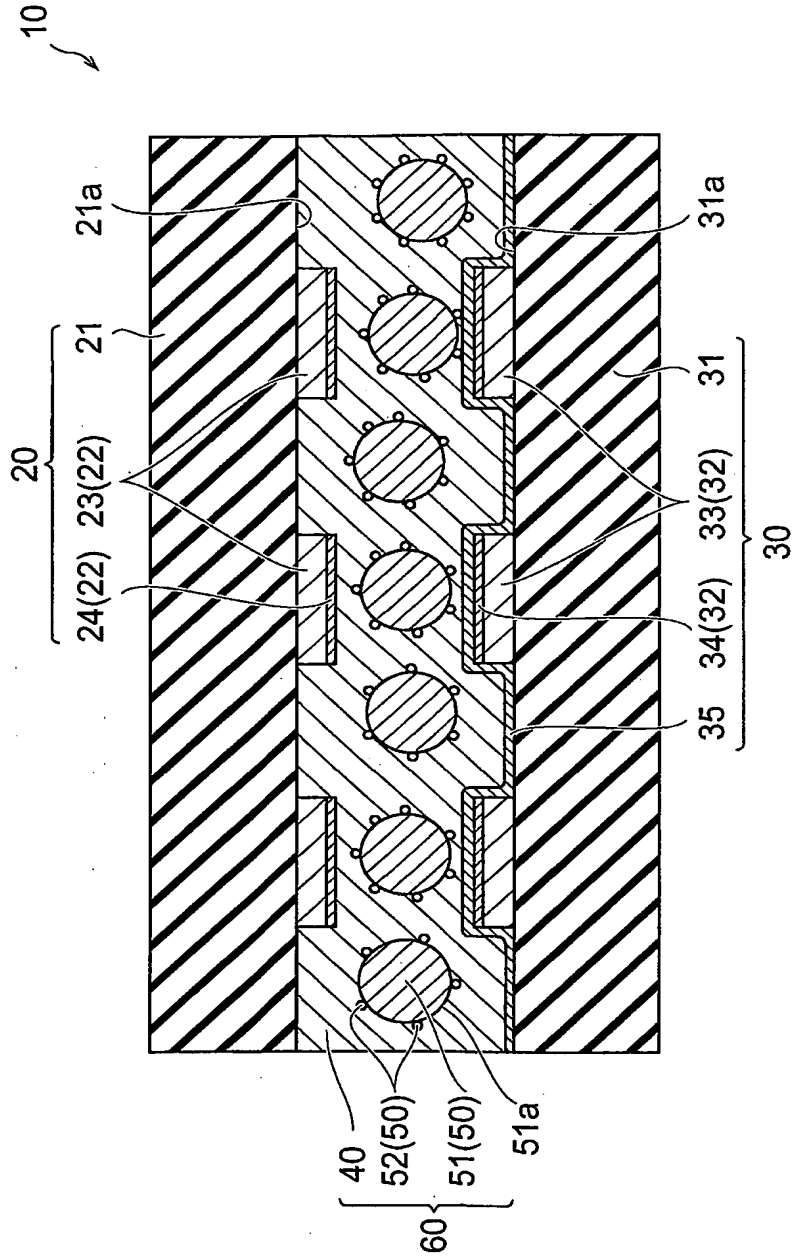
【図 4】 本発明の回路部材の接続構造の製造方法の一工程を示す断面図である。

【符号の説明】

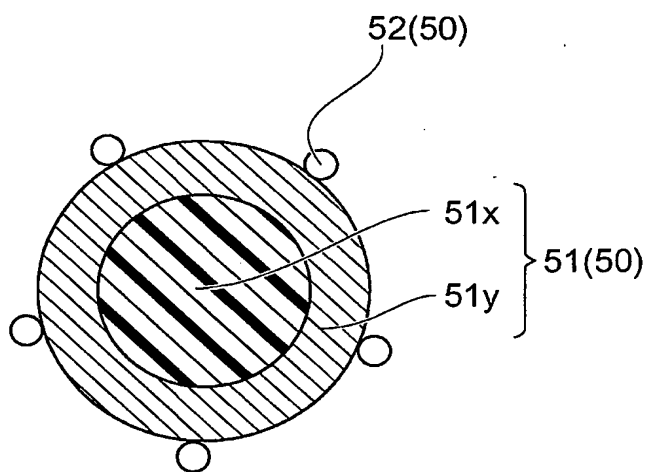
【0123】

10…回路部材の接続構造、20…回路部材（第一の回路部材）、21…回路基板（第一の回路基板）、21a…主面、22…回路電極（第一の回路電極）、24, 34…電極表面層、30…回路部材（第二の回路部材）、31…回路基板（第二の回路基板）、31a…主面、32…回路電極（第二の回路電極）、35…基板表面層、50…被覆粒子、51…導電粒子、51a…表面、52…絶縁性微粒子、60…回路接続部材、61…フィルム状回路接続材料。

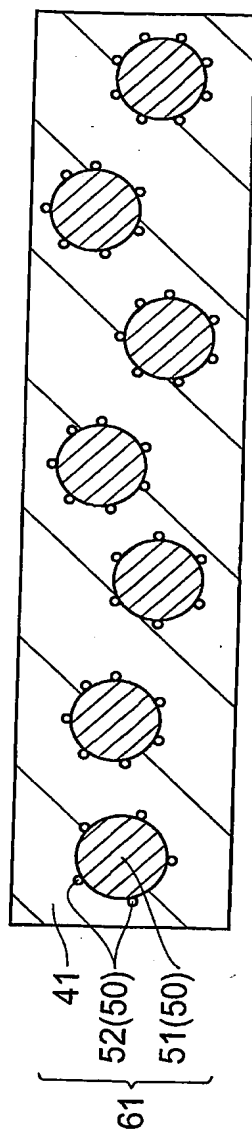
【書類名】 図面  
【図 1】



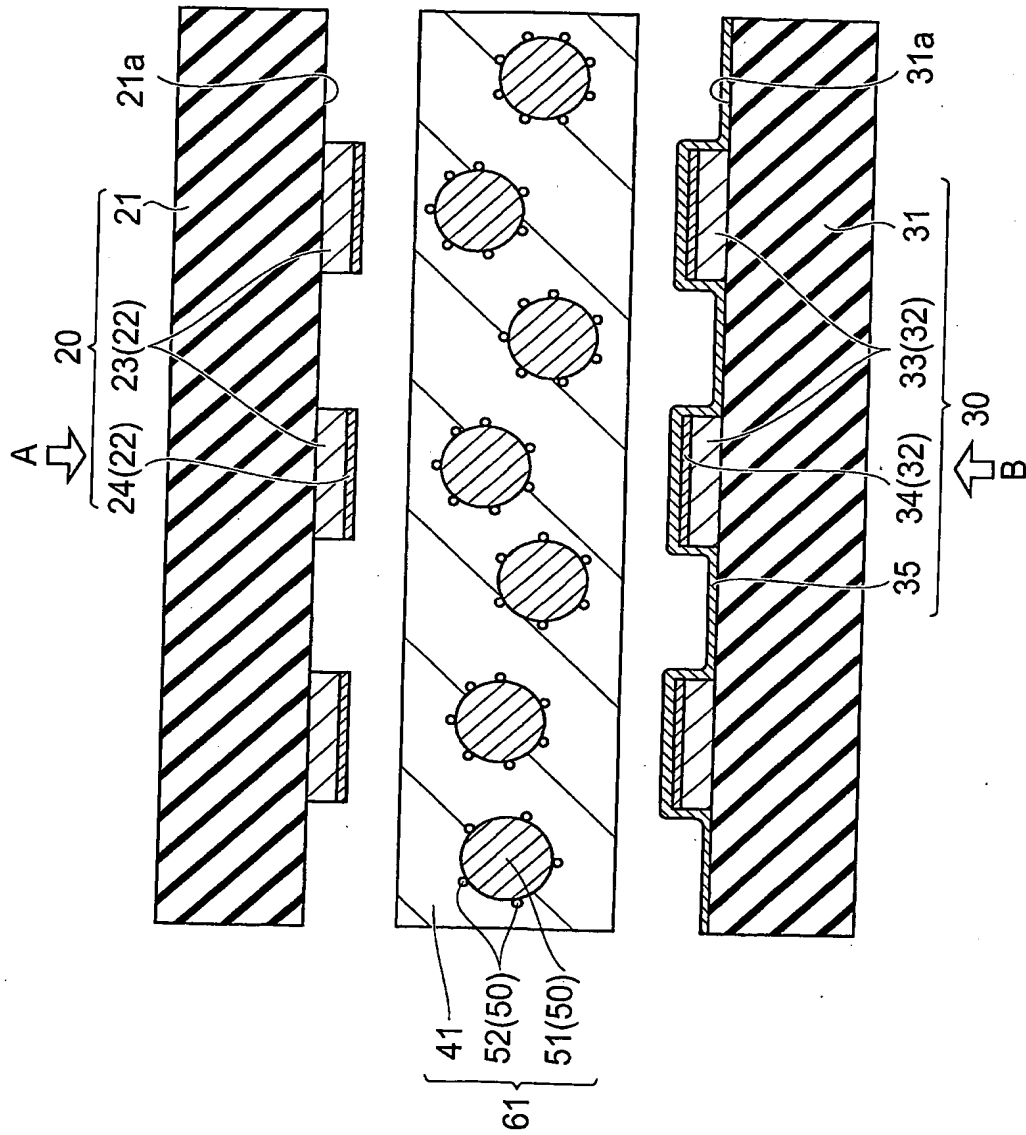
【図 2】



【図 3】



【図 4】





## 【書類名】要約書

## 【要約】

【課題】 対向する回路電極間の接続抵抗を低く、且つ、隣り合う回路電極間で絶縁性を十分に向上できる回路接続材料、これを用いたフィルム状回路接続材料、回路部材の接続構造及びその製造方法を提供する。

【解決手段】 本発明の回路部材の接続構造 10 は、回路基板 21 の主面 21a 上に複数の回路電極 22 が形成された回路部材 20 と、回路基板 31 の主面 31a 上に複数の回路電極 32 が形成された回路部材 30 とを備える。回路電極 22, 32 が対向するように回路部材 20, 30 同士を接続する回路接続部材 60 は、本発明の回路接続材料の硬化物からなる。本発明の回路接続材料は、接着剤組成物及び、導電粒子 51 の表面 51a の一部が絶縁性微粒子 52 により被覆された被覆粒子 50 を含有しており、被覆粒子 50 の比重は、導電粒子 51 の比重の  $97/100 \sim 99/100$  である。

【選択図】 図 1

特願 2004-002308

ページ: 1/E

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[000004455]

1. 変更年月日  
[変更理由]

1993年 7月27日

住 所  
氏 名

住所変更  
東京都新宿区西新宿2丁目1番1号  
日立化成工業株式会社

出証番号 出証特2005-3011368

From the INTERNATIONAL BUREAU

**PCT**NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

HASEGAWA, Yoshiaki  
SOEI PATENT AND LAW FIRM, Ginza First Bldg.,  
10-6, Ginza 1-chome, Chuo-ku, Tokyo  
1040061  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 24 March 2005 (24.03.2005)	
Applicant's or agent's file reference FP04-0469-00	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
International application No. PCT/JP05/000070	International filing date (day/month/year) 06 January 2005 (06.01.2005)
International publication date (day/month/year)	Priority date (day/month/year) 07 January 2004 (07.01.2004)
Applicant HITACHI CHEMICAL CO., LTD. et al	

- By means of this Form, which replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents, the applicant is hereby notified of the date of receipt by the International Bureau of the priority document(s) relating to all earlier application(s) whose priority is claimed. Unless otherwise indicated by the letters "NR", in the right-hand column or by an asterisk appearing next to a date of receipt, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- (If applicable)* The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which, **on the date of mailing of this Form**, had not yet been received by the International Bureau under Rule 17.1(a) or (b). Where, under Rule 17.1(a), the priority document must be submitted by the applicant to the receiving Office or the International Bureau, but the applicant fails to submit the priority document within the applicable time limit under that Rule, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- (If applicable)* An asterisk (\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b) (the priority document was received after the time limit prescribed in Rule 17.1(a) or the request to prepare and transmit the priority document was submitted to the receiving Office after the applicable time limit under Rule 17.1(b)). Even though the priority document was not furnished in compliance with Rule 17.1(a) or (b), the International Bureau will nevertheless transmit a copy of the document to the designated Offices, for their consideration. In case such a copy is not accepted by the designated Office as the priority document, Rule 17.1(c) provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
07 January 2004 (07.01.2004)	2004-002305	JP	03 March 2005 (03.03.2005)
07 January 2004 (07.01.2004)	2004-002308	JP	03 March 2005 (03.03.2005)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. +41 22 740 14 35

Authorized officer

Landicho Remedios

Facsimile No. +41 22 338 70 10  
Telephone No. +41 22 338 8468